

## 60. トポロジカル分極表面におけるスピン軌道結合状態の解明と制御

東京大学生産技術研究所 准教授 金澤 直也

### 概要

本研究では、近年の物性物理学において大きな注目を集めているトポロジーの概念を用いて、ありふれた元素のみで構成された B20 型化合物 FeSi における新たなスピン軌道結合機能を開拓することを目的とした。FeSi 薄膜表面では Zak 位相によって特徴づけられる分極表面状態が実現し、重元素を用いなくとも強いスピン軌道相互作用に基づくトポロジカルな表面電子構造や磁気特性を生み出すことが近年の我々の研究によって示されている。本研究においては、X 線スペクトロスコーピーや磁気力顕微鏡などを用いて FeSi 表面・界面のスピン・軌道状態を直接観測し、さらに異種物質との接合による近接効果を調べることで、新規の 2 次元トポロジカル磁性や高次非線形伝導を実現することに成功した。特に、重金属 Pt 接合系で世界初となる大面積 2 次元スキルミオン状態を観測するとともに、高電流密度下で 7 次にも及ぶ高次の非線形ホール効果を検出し、トポロジカル磁気構造の集合体がもたらす複雑な電気伝導特性を明らかにした。これらの成果は、省電力エレクトロニクスや量子情報技術に向けた軽元素ベースのスピン트로ニクス材料設計の可能性を拓くとともに、非線形スピンドYNAMICS を利用した次世代リザバーコンピューティングの基盤形成にも貢献するものである。

助成金は高品質薄膜合成に欠かせない真空装置の導入に使用させていただき、滞りなく薄膜デバイスを作製することができました。研究室主宰にあたり実験基盤の構築を支えて頂き心より感謝申し上げます。

### 背景および目的

物性物理学では近年、トポロジーの概念の導入により、新奇な量子物質の探索が活発に行われてきた。特にトポロジカル絶縁体をはじめとするトポロジカル物質の発見により、量子技術の大きな進展が期待されている。これらのトポロジカル物質においては、重元素に由来する強いスピン軌道相互作用が必須要素と考えられてきたため、原子番号の大きな元素を多量に含む材料系が主な研究対象であった。しかし、これらの重元素は毒性や希少資源の観点から課題が残り、より軽い元素が中心となる系で同様の量子機能を実現する方法が求められている。

その中で、B20 型化合物 FeSi は古くから非磁性絶縁体として知られていたが、薄膜化によって Zak 位相由来の分極表面状態が現れ、表面近傍で金属強磁性が発現することが近年の我々の研究により明らかとなった。FeSi というありふれた軽元素化合物においても強いスピン軌道結合に関連した特異な表面電子状態を創出できる可能性が示され、重元素を用いないトポロジカル物質開拓に新たな視点がもたらされた。

そこで本研究では、Zak 位相に着目した FeSi の表面・界面状態を系統的に調べることで、新規のトポロジカル磁気構造やスピン軌道相互作用を生かしたデバイス応用の可能性を探究するとともに、その起源となる軌道状態や外部制御による磁気異方性・伝導特性の変調メカニズムを解明することを目的とした。

### 方法

FeSi 薄膜は、分子線エピタキシー法を用いて高品質なエピタキシャル試料を作製し、その表面に各種キャッピング層をスパッタリング法で接合する手法によって系統的に作製した。作製した試料に対しては、X 線磁気円二

色性(XMCD)によってスピン・軌道磁気モーメントを測定し、FeSi 表面および界面における軌道状態の大きさや異方性の大きさを評価した。また、磁気力顕微鏡(MFM)を用いた磁気構造の実空間観察や、微細加工を施したサンプルでの高次高調波信号検出をはじめとする非線形伝導測定を行うことで、2次元スキルミオンなどのトポロジカル磁気構造の生成や電流印加下での動的応答を調べた。さらに、第一原理的な界面電子状態計算の情報も参考にしつつ、接合層との間に生じる近接効果やジャロシンスキー・守谷相互作用の大きさなどを総合的に評価することで、Zak 位相由来の分極表面と接合層との電子混成メカニズムやスピン軌道結合物性の強化手法を検討した。

## 結果および考察

X線磁気円二色性によってFeSi表面のスピン・軌道状態を直接観測したところ、従来のFe系物質と比較して非常に大きな軌道磁気モーメントが存在し、その値はスピン磁気モーメントに対しておよそ40%程度に達することがわかった。この大きな軌道モーメントは、FeSi表面の低対称性構造やFeとSiの複雑な7配位環境により、d軌道縮退が十分に解けず、スピン軌道相互作用を介した軌道混成状態が実現しているためと考えられる。また、面直方向と面内方向でほとんど異方性を示さない等方的な振舞いは、従来の軌道モーメントと磁気異方性の大きさの比例関係という経験則とは異なるものである。その結果、外部歪みによる微小な対称性の変化やゲート電圧による電子フィリング変調などによってd軌道占有状態が変化すれば磁気異方性を大きく変調できる可能性を示すことができた。

また、重金属PtをFeSi表面に接合した結果、界面におけるスピン軌道相互作用(Dzyaloshinskii・守谷相互作用)が著しく強化され、FeSi表面の強磁性秩序が変調され、世界初となる大面積の2次元スキルミオン状態を作り出すことに成功した(図1)。スキルミオンはナノスケールの渦状のスピン構造であり、そのトポロジカルなスピン配列から様々なスピントロニクス応用が期待されている。本研究では、実際に磁気力顕微鏡によってスキルミオン形成を観測し、高電流印加に対する応答を調べた。形成されたスキルミオン集団は欠陥などに強くピン留めされ、ある閾電流密度以上において磁気構造の複雑な変形が確認された。さらに、磁気構造変形が顕著になる高電流密度下での高次高調波電圧信号測定により、2次から7次に及ぶ高次非線形ホール抵抗が検出され、スピントルクによるスピン駆動とトポロジカルな磁気テクスチャに起因する幾何学的位相効果が複合的に寄与していることが明らかとなった。これらの非線形伝導特性は、次世代リザバーコンピューティングなど非従来型デバイスへの応用可能性を示唆するとともに、軽元素に基づくトポロジカルスピントロニクス材料の新たな設計指針として、環境負荷や資源枯渇の課題に対する解決策となり得ることを示した。

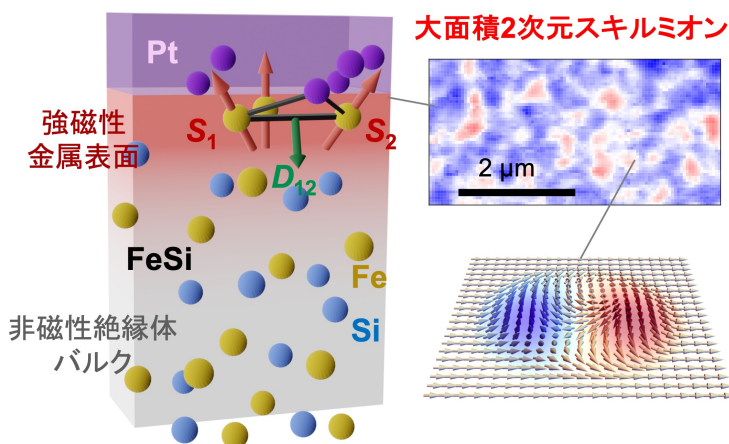


図1. Pt/FeSi 界面における世界初の大量2次元スキルミオン状態の形成。

Pt/FeSi 二層膜界面における Dzyaloshinskii-守谷相互作用による強磁性スピン状態の変調の様子を示した模式図(左)と観測した2次元スキルミオン集合体の磁気力顕微鏡像とスキルミオンの模式図(右)。

## 発表論文

- 1) Y. Guang, Y. Fujishiro, A. Tanaka, L. Peng, Y. Kaneko, N. Kanazawa, Y. Tokura and X.-Z. Yu, "Topological stability of spin textures in Si/Co-doped helimagnet FeGe", J. Phys. Mater. **7**, 025009 (2024).
- 2) Y. Sato, S. Nagahama, I. Belopolski, R. Yoshimi, M. Kawamura, A. Tsukazaki, N. Kanazawa, K. S. Takahashi, M. Kawasaki and Y. Tokura, "Molecular beam epitaxy of superconducting  $\text{FeSe}_x\text{Te}_{1-x}$  thin films interfaced with magnetic topological insulators", Phys. Rev. Materials **8**, L041801 (2024).
- 3) T. Hori, N. Kanazawa, K. Matsuura, H. Ishizuka, K. Fujiwara, A. Tsukazaki, M. Ichikawa, M. Kawasaki, F. Kagawa, M. Hirayama and Y. Tokura, "Strongly pinned skyrmionic bubbles and higher-order nonlinear Hall resistances at the interface of Pt/FeSi bilayer", Phys. Rev. Materials **8**, 044407 (2024).
- 4) A. Kitaori, J. S. White, V. Ukleev, L. Peng, K. Nakajima, N. Kanazawa, X.-Z. Yu, Y. Ōnuki and Y. Tokura, "Enhanced emergent electromagnetic inductance in  $\text{Tb}_5\text{Sb}_3$  due to highly disordered helimagnetism", Commun. Phys. **7**, 159 (2024).
- 5) Y. Fujishiro, C. Terakura, A. Miyake, N. Kanazawa, K. Nakazawa, N. Ogawa, H. Kadobayashi, S. Kawaguchi, T. Kagayama, M. Tokunaga, Y. Kato, Y. Motome, K. Shimizu and Y. Tokura, "Pressure-induced quantum melting of chiral spin order and subsequent transition to a degenerate semiconductor state in FeGe", Phys. Rev. B **110**, L220401 (2024).
- 6) 金澤直也, 平山元昭, "非磁性絶縁体 FeSi における強磁性トポロジカル表面状態の発現と強スピン-軌道結合物性", 固体物理 **59**, 133-143 (2024).
- 7) 金澤直也, "カイラル磁性体におけるトポロジカルスピン構造", 固体物理 **59**, 631-641 (2024).